

DERWENT-ACC-NO: 1988-144027

DERWENT-WEEK: 198821

COPYRIGHT 1999 DERWENT INFORMATION LTD

TITLE: Dielectric compsn. - comprises
dielectric ceramic material of oxide(s) of barium,
samarium and titanium and
also organic polymer

PATENT-ASSIGNEE: MATSUSHITA ELEC IND CO LTD[MATU]

PRIORITY-DATA: 1986JP-0231656 (September 30, 1986)

PATENT-FAMILY:

PUB-NO	PAGES	PUB-DATE	
LANGUAGE		MAIN-IPC	
JP 63086309 A		April 16, 1988	N/A
004	N/A		

APPLICATION-DATA:

PUB-NO	APPL-DESCRIPTOR	APPL-NO
APPL-DATE		
JP 63086309A	N/A	
1986JP-0231656	September 30, 1986	

INT-CL (IPC): C08K007/18, C08L101/00 , H01B003/00

ABSTRACTED-PUB-NO: JP 63086309A

BASIC-ABSTRACT:

Dielectric compsn. comprises 70-5 vol.% dielectric ceramic material of BaO/Sm2O3/TiO2 and 30-95 vol.% organic polymer material.

The dielectric ceramic material pref. comprises 5-23 mol.% BaO, 2.5-37.5 mol.% Sm2O3 and 57-82.5 mol.% TiO2. The polymer material is pref. tetrafluoroethylene- or polyolefin-homopolymer or copolymer

of
tetrafluoroethylene and ethylene, propylene,
hexafluoropropylene, vinyl
fluoride, vinylidene fluoride or trifluoroethylene. The
dielectric prod. is
prepd. by blending the dielectric material and binder
uniformly, pressure
moulding the mixt. under the moulding conditions of binder
resin and calcining
the moulded prod. USE/ADVANTAGE - The dielectric compsn.
has high specific
inductive capacity and cutting and drilling workability.
It is used as
integrated circuit boards for microwave frequency range.

CHOSEN-DRAWING: Dwg.0/0

TITLE-TERMS: DIELECTRIC COMPOSITION COMPRISE DIELECTRIC
CERAMIC MATERIAL OXIDE
BARIUM SAMARIUM TITANIUM ORGANIC POLYMER

DERWENT-CLASS: A85 L03 U11 X12

CPI-CODES: A08-M09A; A09-A03; A12-E07C; L02-G05;

EPI-CODES: U11-A05B; X12-E01A; X12-E02B;

UNLINKED-DERWENT-REGISTRY-NUMBERS: 0339U; 0964U ; 1499U ;
1966U ; 1966U

POLYMER-MULTIPUNCH-CODES-AND-KEY-SERIALS:

Key Serials: 0210 0224 0066 0072 0180 0231 1995 1996 2198
2200 2201 2218 2220
2319 2462 2545 2549 2551 2682 2740 3316 0232 0947 0241 3157
0949 0250 3168 0963
0768 0845 0970
Multipunch Codes: 014 04- 041 046 06- 062 064 07& 08- 087
09& 10& 15- 19- 23&
231 236 308 310 342 359 44& 456 458 476 506 507 509 54& 609
623 627 628 654 678
688 721 725 726 014 034 04- 041 046 047 06- 062 064 07& 08-
087 09& 10& 15- 19-
23& 231 236 27& 308 310 342 359 44& 456 458 476 506 507 509
54& 609 623 627 628
654 678 721 725 726 014 034 04- 041 046 050 06- 062 064 07&
08- 087 09& 10& 15-
19- 23& 231 236 27& 308 310 342 359 44& 456 458 476 506 507

509 54& 609 623 627
 628 654 678 721 725 726 014 034 04- 06- 062 064 07& 08- 087
 089 09& 10& 15- 19-
 23& 231 236 27& 308 310 342 359 44& 456 458 476 506 507 509
 54& 609 623 627 628
 654 678 721 725 726 014 034 04- 06- 061 062 064 07& 08- 087
 09& 10& 15- 19- 23&
 231 236 27& 308 310 342 359 44& 456 458 476 506 507 509 54&
 609 623 627 628 654
 678 721 725 726 014 034 04- 06- 062 064 07& 071 08- 087 09&
 10& 15- 19- 23& 231
 236 27& 308 310 342 359 44& 456 458 476 506 507 509 54& 609
 623 627 628 654 678
 721 725 726 014 034 04- 06- 062 064 07& 08- 087 09& 090 10&
 15- 19- 23& 231 236
 27& 308 310 342 359 44& 456 458 476 506 507 509 54& 609 623
 627 628 654 678 721
 725 726

SECONDARY-ACC-NO:

CPI Secondary Accession Numbers: C1988-064431

Non-CPI Secondary Accession Numbers: N1988-109789

⑫ 公開特許公報(A)

昭63-86309

⑬ Int.Cl.⁴ 識別記号 庁内整理番号 ⑭ 公開 昭和63年(1988)4月16日
 H 01 B 3/00 A-8623-5E
 3/12 303
 // C 08 K 7/18 CAH
 KCL B-6845-4J
 C 08 L 101/00 審査請求 未請求 発明の数 1 (全4頁)

⑮ 発明の名称 誘電体材料

⑯ 特 願 昭61-231656

⑰ 出 願 昭61(1986)9月30日

⑱ 発 明 者 大 内 宏 大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器産業株式会社内
 ⑲ 出 願 人 松下電器産業株式会社 大阪府門真市大字門真1006番地
 ⑳ 代 理 人 弁理士 中尾 敏男 外1名

PTO 2003-3258

S.T.I.C. Translations Branch

明 細 書

1、発明の名称

誘電体材料

2、特許請求の範囲

(1) BaO-Sm₂O₃-TiO₂系誘電体磁器材料70～5体積%と有機高分子材料30～95体積%とからなる誘電体材料。

(2) BaO-Sm₂O₃-TiO₂系誘電体磁器材料がBaO 5～23モル%、Sm₂O₃ 2.5～37.5モル%、TiO₂ 57～82.5モル%の組成範囲にあり、有機高分子材料が4フッ化エチレンの単独または共重合体である特許請求の範囲第1項記載の誘電体材料。

3、発明の詳細な説明

産業上の利用分野

本発明は誘電体材料に係り、とくにBaO-Sm₂O₃-TiO₂系誘電体磁器粉末と有機高分子材料とからなるマイクロ波用複合誘電体や微小容量コンデンサ材料に用いることができる誘電体材料に関するものである。

従来の技術

最近、マイクロ波周波数帯域における通信の発達とともにマイクロ波回路の集積化が積極的に進められている。

従来、マイクロ波用の集積化基板(MIC基板)には誘電体材料として4フッ化エチレンやポリスチレン樹脂などの両面に銅張りしたものが使用され、この銅板上に回路を印刷し不要部分をエッチングによって取除き回路を形成してきた。このとき容量などの回路素子には基板の誘電率が利用されてきた。

発明が解決しようとする問題点

しかし乍ら、4フッ化エチレンやポリスチレンなどの有機高分子材料の誘電率は3～2と小さいため、例えば共振回路を形成するときは導電パターンの形状が大きくなり小形化の障害となっていた。従って、より誘電率の大きいマイクロ波用基板材料の開発が要望されてきた。

最近、マイクロ波用誘電体磁器の開発が進み高誘電率、高Qでさらに共振周波数の温度安定性の

優れた材料が得られている。しかし乍ら、誘電体磁器基板では基板を切斷あるいは孔をあけるなどの加工を行なうときは一般に磁器が硬くてもろいために基板に欠けや割れを生じ易い欠点がある。

本発明の目的は有機高分子材料が持っている柔軟性とマイクロ波誘電体磁器の持っている優れた誘電特性を利用し、比誘電率が大きく切斷や孔あけ加工などの機械的加工性に優れた複合誘電体材料を提供しようとするものである。

また、本発明はマイクロ波周波数帯で高いQを持ち、比誘電率の温度特性が安定で、比誘電率が一般の高分子材料に比べて大きい複合誘電体材料を提供しようとするものである。

更に本発明はマイクロ波誘電体磁器に比べて柔軟性に優れ加工性の容易な複合誘電体材料を提供しようとするものである。

問題点を解決するための手段

BaO-Sm₂O₃-TiO₂系誘電体磁器材料70~5体積%と有機高分子材料30~95体積%とからなる無機と有機の複合誘電体材料を構成する。

子材料としては誘電損失の小さい4フッ化エチレンやポリエチレンあるいはポリオレフィン系の単独重合体および4フッ化エチレンと他の重合体(例えばエチレン、プロピレン、6フッ化プロピレン、フッ化ビニル、フッ化ビニリデン、3フッ化エチレンなど)との共重合体を使用することができる。これらの有機高分子材料の中ではとくに4フッ化エチレンの単独重合体が誘電特性の点から好適である。

本発明の複合誘電体材料を製造するには誘電体磁器材料と有機高分子材料をいずれも粉末状態で均質となるように混合した後、有機高分子材料の成形条件下で成形する。例えばポリ4フッ化エチレンの場合は、混合粉末を約700~1000kg/cm²の加圧力の下で成形した後、約420~330℃の温度で焼成して成形体とする。

以下、本発明を実施例によって詳細に説明する。

実施例1

BaO 17モル%, Sm₂O₃ 14モル%, TiO₂ 89モル%からなる誘電体セラミックス粉末(32メッシュパス)とポリ4フッ化エチレン樹

作用

誘電体磁器材料と有機高分子材料の混合比は体積%で70:30から5:95の範囲から選ばれる。この範囲に限定したのは、誘電体磁器材料が70体積%以上あるいは有機高分子材料が30体積%以下になると混合物の柔軟性がなくなり加工性が悪く均質な複合誘電体材料が得られないからであり、また、誘電体磁器材料が5体積%以下あるいは有機高分子材料が95体積%以上になると比誘電率の増加が見られず複合した効果が得られないからである。

実施例

本発明の複合誘電体材料のうち、BaO-Sm₂O₃-TiO₂系材料は特公昭59-37526号公報に示されているように、その構成成分比がBaO 5~23モル%, Sm₂O₃ 2.5~37.5モル%, TiO₂ 57~82.5モル%の組成範囲にあり、3GHzにおけるQが3370~330、比誘電率が84~32、比誘電率の温度特性が-433~+485ppm/℃のものである。また、有機高分子

脂粉末を表1に示す比率で均一になる様混合し、この混合原料を400kg/cm²の圧力下で成形した後380℃の温度で3時間加熱焼成して直径5.6cmで高さ8cmの円柱状複合誘電体を作製した。得られた複合誘電体に対して振動法による誘電体共振器法で8.5GHzにおける比誘電率、Q値を測定し、また、1MHzにおける比誘電率の温度特性を測定した。それらの測定結果は表1にまとめて示す。

(以下余白)

表 1

試料 番号	セラミックス 粉 (体積%)	ポリ4フッ化 エチレン樹脂 (体積%)	比誘電率	Q	比誘電率の 温度特性 (ppm/°C)
1*	1	99	2.5	1000	0±20
2	5	95	3.5	1080	0±20
3	10	90	4.8	1160	0±20
4	30	70	11.0	1290	0±20
5	60	50	16.7	1170	0±20
6	70	30	21.2	1070	0±20
7*	80	20	N.D.	N.D.	N.D.

* 本発明範囲外の比較例；N.D. 均質な試料が得られなため測定不能。

し、この後の処理を実施例1と同様に行なって円柱状複合誘電体を作製した。得られた複合誘電体に対して実施例1と同じ方法で誘電特性を測定した。それらの測定結果をまとめて表2に示す。

(以下余白)

表 2

試料 番号	セラミックス 粉 (体積%)	ポリ4フッ化 エチレン樹脂 (体積%)	比誘電率	Q	比誘電率の 温度特性 (ppm/°C)
1*	1	99	2.3	1000	20±20
2	5	95	3.4	1050	20±20
3	10	90	4.6	1130	20±20
4	30	70	10.8	1250	20±20
5	60	50	16.6	1150	20±20
6	70	30	21.0	1060	20±20
7*	80	20	N.D.	N.D.	N.D.

* 本発明範囲外の比較例；N.D. 均質な試料が得られなため測定不能。

表1の中で試料番号1, 7は本発明範囲外の比較例であり、それ以外の試料が本発明範囲内の実施例である。

表1から明らかなように、本発明による複合誘電体はマイクロ波周波数で比誘電率が大きくQも高い値を示す。また、比誘電率の温度特性は0 ppm/°Cを中心とした小さい範囲内の特性を示し温度変化に対して安定した性能をもっている。

さらに、本発明にかゝる複合誘電体は柔軟性を持っているので切削や孔あけ加工が容易であり、例えばマイクロ波用基板として使用したとき基板の表と裏面との導通処理が非常に簡単に行なえる長所を持っている。また、前記の特性を用いて本発明の複合誘電体は微量容量のコンデンサ材料として用いることができる。

実施例2

BaO 14.7モル%, Sm_2O_3 17.6モル%, TiO_2 67.7モル%からなる誘電体セラミックス粉末(32メッシュパス)とポリ4フッ化エチレン樹脂粉末を表2に示す比率で均一になる様混合

表2の中で試料番号1, 7は本発明範囲外の比較例であり、それ以外の試料が本発明範囲内の実施例である。表2から明らかなように、本発明による複合誘電体はマイクロ波周波数で比誘電率と Q が大きい値を示し、また、比誘電率の温度特性は $20\text{ ppm}/^\circ\text{C}$ を中心とした小さい範囲内の特性を示し温度変化に対して安定した性能をもっている。加えて、本発明の複合誘電体は柔軟性を持っているので切削や孔あけ加工が容易であり、マイクロ波基板としたとき表と裏面との導通処理が簡単に行なえる。また、本発明の複合誘電体はセラミックス粉末の組成を変えることによって比誘電率の温度特性を正又は負の値を持たせることができるので、例えば微少容量の温度補償用コンデンサ材料として使用することができ、その工業的利用価値の大きいものである。

発明の効果

本発明によれば、比誘電率が高く、しかも切断や孔あけ加工などの機械的加工性に優れた誘電材料を得ることができる。

PTO: 2003-3258

Japanese Published Unexamined Patent Application (A) No. 63-086309, published April 16, 1988; Application Filing No. 61-231656, filed September 30, 1986; Inventor(s): Hiroshi Oouchi; Assignee: Matsushita Electric Corporation; Japanese Title: Dielectric Materials

DIELECTRIC MATERIALS

CLAIM(S)

1. A dielectric material composed of BaO-Sm₂O₃-TiO₂ group dielectric ceramic material 70-5 volume % and organic high polymer material 30 – 95 volume %.
2. A dielectric material, as cited in Claim 1, wherein the composition ratio of BaO-Sm₂O₃-TiO₂ is 5 – 23 mol % of BaO₅, 2.5 – 3,75% of Sm₂O₃, and 57 – 82.5% of TiO₂, and the organic high polymer material is a monomer or copolymer of ethylene tetrafluoride.

DETAILED DESCRIPTION OF THE INVENTION

(Field of Industrial Application)

The present invention pertains to a dielectric material, particularly to a dielectric material that can be used for a composite dielectric member for microwave made of BaO-Sm₂O₃-TiO₂ group dielectric ceramic powder and

of organic high polymer material and that can be used for a very small capacity capacitor.

(Prior Art)

As communication in microwave frequency band develops, integration of a microwave circuit is rapidly progressing.

In the prior art, for an integrated circuit board for microwave (MIC board), one made of ethylene tetrafluoride or polystyrene resin and plated with copper on both surfaces was used for a dielectric material. Circuits were printed on this copper sheet, and unnecessary portions were etched away to form the circuits. At this time, the permittivity of the board is used for the circuit element such as a capacitor.

(Problems of the Prior Art to Be Addressed)

Since the permittivity of the organic high polymer material, such as ethylene tetrafluoride or polystyrene, is as small as $3 - 2$, its conducting pattern gets large when a resonator circuit is formed, which is a hindrance to miniaturization. Accordingly, development of a MIC board having a higher permittivity has been demanded.

In recent years, due to advanced development of dielectric ceramic material for microwave, an excellent material having high permittivity, high Q, and temperature-stable resonance frequency can be produced. However,

when a dielectric magnetic board is put to a process of cutting or hole-punching, the board tends to be cracked or broken since a ceramic material is hard and brittle.

The objective of the present invention is to present a composite dielectric material having a high relative permittivity and excellent workability, such as cutting or hole-punching, by using excellent dielectric characteristics of dielectric ceramic material for microwave and flexibility of organic high polymer material.

In addition, the present invention aims to present a composite dielectric material, which has a high Q [sic] in microwave frequency band, a temperature-stable relative permittivity, which is higher than a general high polymer material.

Moreover, the present invention aims to present a composite dielectric material, which is more flexible and more excellent in workability than a microwave dielectric ceramic material for microwave.

(Means to Solve the Problems)

An inorganic and organic composite dielectric material composed of BaO-Sm₂O₃-TiO₂ dielectric ceramic material 70 – 5 volume % and of organic high polymer material 30 – 95 volume % is made.

(Operation)

The mixing ratio of the dielectric ceramic material and of organic high polymer material is selected from the range of 70 : 30 – 5 : 95 in volume. The reason for limiting to this range is that when the dielectric ceramic material is 70 volume % or higher or the organic high polymer material is 30 volume % or lower, flexibility of the admixture is lost undercutting the workability, so the composite dielectric material with uniform quality cannot be produced. When the dielectric ceramic material is 5 volume % or less or the organic high polymer material is 95 volume % or higher, the relative permittivity is not increased, so the composite effect cannot be produced.

(Embodiment)

As disclosed in Japanese Examined Published Application 59-37526, in the composition ratio of BaO-Sm₂O₃-TiO₂ of the composite dielectric material, BaO₅ is 23 mol %, Sm₂O₃ is 2.5 – 37.5 mol %, and TiO₂ is 57 – 82.5 mol %. The Q in 3GHz is 3370 – 330, the relative permittivity [sic] is 84 – 32, and the temperature characteristic of relative permittivity is –433 – +485 ppm/C°. As to the organic high polymer material, ethylene tetra fluoride having a low dielectric loss, single polymer of polyethylene or polyolefin, or copolymer of ethylene tetrafluoride and other compound (e.g.,

ethylene, propylene, propylene hexafluoride, vinylfluoride, vinylidene fluoride, ethylene trifluoride) can be used. Of these organic high polymer materials, a monopolymer of ethylene tetrafluoride is particularly preferable in terms of dielectric characteristic.

To manufacture the composite dielectric material of the present invention, the dielectric ceramic material powder and the organic high polymer material powder are evenly mixed and formed by forming parameters for the organic high polymer material. For example, with the ethylene polytetrafluoride, the mixed powder is formed under pressure of nearly 700-100 kg/cm² and sintered at nearly 420-330°C. The embodiment example of the present invention is explained in detail below.

(Embodiment Example 1)

The dielectric ceramic powder (32 mesh pass) composed of BaO 17 mol %, Sm₂O₅, 14 mol %, and of TiO₂ 69 mol % and the ethylene polytetrafluoride resin powder were mixed evenly at the ratio shown in Table 1. After this admixture was formed under pressure of 400 kg/cm², it was sintered at 380°C for 3 hours to manufacture a columnar composite dielectric body with diameter 5.6 cm and height 8 cm. The relative permittivity and Q value of the produced composite dielectric body in 8.5 G Hz were

measured by a dielectric body resonator method using a perturbation method. Also, the temperature characteristic of the relative permittivity in 1 M hz was measured. The result of measuring is shown in Table 1. [Attached to the end of translation.] The sample numbers 1 and 7 indicate the comparative examples which are not the embodiment examples of the present invention, and the samples other than them are embodiment examples of the present invention. As is evident from the Table 1, the composite dielectric material indicated a high relative permittivity and high Q value in microwave frequency band. The temperature characteristic of the relative permittivity was in the neighborhood of 0 ppm/°C and stable against temperature changes. The composite dielectric body of the present invention was flexible, therefore, was easy to cut and punch holes. For example, when it is used for an MIC board, the front and back surfaces can be conducted very easily, which is advantageous. By using the aforementioned characteristics, the composite dielectric body of the present invention can be used as a capacitor material with a very small capacity.

(Embodiment Example 2)

The dielectric ceramics power (32 mesh pass) composed of BaO 14.7 mol %, Sm_2O_3 17.6 mol %, TiO_2 67.7 mol % and of ethylene polytetrafluoride resin powder was mixed evenly at the mixing ratio shown in Table 2. This was processed in the same manner as in Embodiment Example 1 to manufacture a columnar composite dielectric body. The produced composite dielectric body was measured for its dielectric characteristics by the same method as in Embodiment Example 1. The result of measuring is shown in Table 2. [Attached to the end of translation.]

Table 1

Sample No.	Ceramic powder (volume %)	Ethylene polytetrafluoride resin (volume %)	Relative permittivity	Q	Temperature characteristic of relative permittivity (ppm/°C)
1*	1	99	2.5	1000	0 +/- 20
2	5	95	3.5	1080	0 +/- 20
3	10	90	4.8	1150	0 +/- 20
4	30	70	11.0	1290	0 +/- 20
5	50	50	16.7	1170	0 +/- 20
6	70	30	21.2	1070	0 +/- 20
7*	80	20	N. D.	N. D.	N.D.

- indicates the comparative examples. N. D. indicates that measurement was not possible because the samples with uniform quality could not be obtained.

Table 2

Sample No.	Ceramic powder (volume %)	Ethylene polytetrafluoride resin (volume %)	Relative permittivity	Q	Temperature characteristic of relative permittivity (ppm/°C)
1*	1	99	2.3	1000	20 +/- 20
2	5	95	3.4	1050	20 +/- 20
3	10	90	4.6	1130	20 +/- 20
4	30	70	10.8	1250	20 +/- 20
5	60	50	16.6	1150	20 +/- 20
6	70	30	21.0	1060	20 +/- 20
7*	80	20	N. D.	N. D.	N. D.

- indicates the comparative examples. N. D. indicates that measurement was not possible because the samples with uniform quality could not be obtained.

Translations

U. S. Patent and Trademark Office

5/29/03

Akiko Smith